

55253

2a

<p>55253 E/27 BAYER AG 19.12.80-DE-047991 (30.06.82) C07d-471/06 C09b-05/62 Perylene tetra:carboxyl di:imide prodn. - by reacting naphthalene di:carboxyl imide in hot alkaline melt and oxidising prod.</p>	<p>E(6-D18) EXAMPLE 188 g Anhydrous (III) were added to a mixt. of 584 g KOH powder and 175 g NaOH powder at 180°C then heated to 185°C and 150 g (II) added. After heating to 195°C the mixt. was stirred and 20 l/hr. air were introduced for 2½ hrs. 141 g (93.4%) of 98.2% pure (I) were isolated from the prod.(9pp016). (G)ISR:- FR1580971 DE1619531 DS1138876 US1625826</p>
<p>D/S: E(CH DE GB LI) Prodn. of perylene-tetracarboxylic acid diimide (I) comprises reacting 1,8-naphthalenedicarboxylic acid imide (II) at 190-210°C in a mixt. of KOH, NaOH and sodium acetate (III) and oxidising the reaction prod.. <u>USE/ADVANTAGES</u> (I) is obtd. in high quality and good yields. It can be converted to a pigment directly or used as starting material for perylene-tetracarboxylic acid and hence pigments or vat dyes or for Pigment Red 179. <u>DETAILS</u> Oxidn. is pref. carried out in the melt, using O₂, gas contg. O₂, oxidising salts or adducts of H₂O₂ on borates or carbonates as oxidant. Reaction is pref. carried out with 1-2 (esp. 1.1-1.5) pts. NaOH, 3-5 (esp. 3.5-4.5) pts. KOH and 1-1.5 (esp. 1.1-1.3) pts. (III) per pt. (II).</p>	<p>0 4 3</p>

BEST AVAILABLE COPY

EP--54806


Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

⑪ Veröffentlichungsnummer: **0 054 806**
A1

⑫

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

⑰ Anmeldenummer: 81110177.3

⑤① Int. Cl.²: **C 09 B 5/62, C 07 D 471/06**

⑳ Anmeldetag: 05.12.81

③① Priorität: 19.12.80 DE 3047991

⑦① Anmelder: **BAYER AG, Zentralbereich Patente, Marken und Lizenzen, D-5090 Leverkusen 1, Bayerwerk (DE)**

④③ Veröffentlichungstag der Anmeldung: 30.06.82
Patentblatt 82/26

⑥④ Benannte Vertragsstaaten: **CH DE GB LI**

⑦② Erfinder: **Schütze, Detlef-Ingo, Dr., Altenberger Domstrasse 170, D-5060 Bergisch-Gladbach 2 (DE)**

⑤④ Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäuredlimid.

⑤⑦ Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäuredlimid, dadurch gekennzeichnet, daß man 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid in einer Mischung aus Kaliumhydroxid, Natriumhydroxid und Natriumacetat bei Temperaturen von 190–210 °C umsetzt und das Reaktionsprodukt oxidiert.

EP 0 054 806 A1

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 5090 Leverkusen, Bayerwerk
Zentralbereich
Patente, Marken und Lizenzen PG/kl-c

Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäure-
diimid

Die Erfindung betrifft ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid durch Umsetzung von 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid in einer Schmelze aus Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid und Na-
5 triumacetat bei 190°C - 210°C. Das entstehende Reaktions-
produkt wird, vorzugsweise direkt in der Schmelze, zu Perylentetracarbonsäurediimid umgesetzt.

Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäure-
diimid sind seit Jahrzehnten bekannt. Bereits in der
10 DE-PS 276 357, Bsp. 1 wird die Umsetzung von 1,8-Naph-
thalindicarbonsäureimid in Alkalihydroxid bei 290°C -
300°C beschrieben. Das Reaktionsgemisch wird nach beendeter Kondensation auf Wasser gegeben und durch Einleiten von Luft oxidiert.

15 Eine Variante dieses Verfahrens ist in BIOS Final Report Nr. 1484, Seite 21 angegeben. 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid wird in einer Mischung aus Kaliumhydroxid

und Natriumacetat bei 220°C umgesetzt und ebenfalls anschließend mit Luft in wäßrigem Medium oxidiert. Beide Verfahrensvarianten sind außerdem in der DE-OS 1 619 531 enthalten, wobei allerdings die
5 Umsetzung des 1,8-Naphthalindicarbonsäureimids in Kaliumhydroxid und Natriumacetat bei 230 - 240°C durchgeführt wird.

Das in der DE-PS 386 057 und in der DE-OS 1 619 531 be-
10 schriebene Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid geht von Perylentetracarbonsäure oder von ihrem Anhydrid aus, das mit Ammoniak kondensiert wird. Da jedoch Perylentetracarbonsäure aus Perylentetracarbonsäurediimid in konzentrierter Schwefelsäure bei
15 Temperaturen oberhalb von 200°C erhalten wird, stellt dieses Verfahren eine aufwendige und deshalb teure Verfahrensvariante dar.

Das neue Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid ist dadurch gekennzeichnet, daß man 1,8-Naphthalindicarbonsäureimide in einer Mischung aus
20 Kaliumhydroxid, Natriumhydroxid und Natriumacetat bei Temperaturen von 190°C - 210°C, vorzugsweise 195°C - 200°C, umsetzt und das Reaktionsprodukt oxidiert.

Die Oxidation kann in üblicher Weise durch Austragen des Reaktionsansatzes auf Wasser und Einleiten von
25 Luft oder durch Umsetzung mit üblichen Oxidationsmitteln erfolgen. Besonders vorteilhaft oxidiert man jedoch direkt in der Reaktionsschmelze. Diese Verfahrens-

variante weicht ab von allen bisher bekannten Verfahren, da sie die Oxidation nach Austragen der Schmelze auf Wasser vorsehen.

- 5 Für 1 Teil 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid werden vorzugsweise 1 - 2 Teile, besonders bevorzugt 1,1 - 1,5 Teile, Natriumhydroxid, 3 - 5 Teile, besonders bevorzugt 3,5 - 4,5 Teile, Kaliumhydroxid und 1 - 1,5 Teile, besonders bevorzugt 1,1 - 1,3 Teile, Natriumacetat eingesetzt.
- 10 Die Oxidation kann beispielsweise mit Sauerstoff, Sauerstoff enthaltenden Gasen, z.B. Luft, oder durch Zugabe von oxidierend wirkenden Salzen wie beispielsweise Nitraten, Dichromaten, Chloraten, Peroxodisulfaten, Addukten von Wasserstoffperoxid an Borate oder Carbonate u.a.
- 15 durchgeführt werden. Bevorzugt ist Luft.

Das neue Verfahren liefert auf einfache Weise Perylen-tetracarbonsäurediimid von hoher Qualität und in guten Ausbeuten.

- 20 Ein weiterer Vorteil des neuen Verfahrens bei Oxidation in der Schmelze besteht darin, daß die Reaktionszeit nach Eintragen des 1,8-Naphthalindicarbonsäureimids bis zum Austragen auf Wasser und Isolieren ca. 3 Stunden beträgt, während beispielsweise nach der Vorschrift BIOS Final Report Nr. 1484, Seite 21, für
- 25 Kondensation und Oxidation 23 Stunden benötigt werden.

Daß diese drastische Herabsetzung der Reaktionszeit nicht Ausbeute und Qualität des Reaktionsproduktes beeinträchtigt, muß als überraschend angesehen werden.

5 Außerdem ergeben sich für die Durchführung weitere Vorteile dadurch, daß beim Eintragen des 1,8-Naphthalindicarbonsäureimids in die Schmelze kein Schäumen auftritt, wie es nach den bekannten Verfahren bei höheren Temperaturen der Fall ist. Deshalb ist es beispielsweise möglich, bereits bei 185°C zügig alles 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid einzutragen, und man erhält somit
10 eine weitere Verkürzung der Reaktionszeit.

Die Aufarbeitung der Reaktionsschmelze nach der Oxidation erfolgt durch Zugabe von Wasser und Isolieren eines feuchten Preßkuchens, der anschließend in verdünnter
15 Säure, z.B. Salzsäure, ausgekocht wird. Nach erneutem Isolieren wird getrocknet. Erfolgte die Oxidation im wäßrigen Milieu, wird das Reaktionsprodukt in üblicher Weise abgetrennt und gereinigt.

Das erhaltene Perylentetracarbonsäurediimid zeichnet
20 sich durch eine hohe Qualität aus und kann entweder durch geeignete Verfahren direkt in ein Pigment überführt werden oder beispielsweise als Ausgangsmaterial für die Herstellung von Perylentetracarbonsäure, die wiederum ein Ausgangsmaterial für Pigmente oder Küpenfarbstoffe darstellt, oder für Pigment Rot 179 (N,N'-
25 Dimethyl-perylentetracarbonsäurediimid) dienen.

Beispiel 1

584 g KOH-Pulver und 175 g NaOH-Pulver werden gemischt und auf 180°C erhitzt. Anschließend werden 188 g wasserfreies Natriumacetat zugesetzt, auf 185°C geheizt und zügig 150 g 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid eingetragen. Danach wird auf 195°C erwärmt und unter gleichzeitigem Überleiten von 20 Litern Luft pro Stunde 2 1/2 Stunden bei dieser Temperatur gerührt. Nach beendeter Reaktion werden 750 ml Wasser zugetropft und danach die Schmelze in 5 Liter Wasser eingerührt. Nach kurzzeitigem Erhitzen zum Sieden wird abgesaugt und mit Wasser gewaschen. Der feuchte Preßkuchen wird in 2 Litern Wasser, das mit 100 ml 36 %iger Salzsäure angesäuert worden ist, zum Sieden erhitzt, erneut abgesaugt, neutral gewaschen und getrocknet. Man erhält 141 g Perylentetracarbonsäurediimid mit einem Reingehalt von 98,2 %. Das entspricht einer Reinausbeute von 93,4 % d. Th..

Beispiel 2

531 g KOH-Pulver und 219 g NaOH-Pulver werden gemischt und auf 180°C erhitzt. Bei dieser Temperatur werden dann unter Stickstoff 171 g wasserfreies Natriumacetat zugesetzt und anschließend bei 185°C zügig 150 g 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid eingetragen. Die Schmelze wird auf 200°C geheizt und 1 Stunde bei dieser Temperatur gerührt. Danach wird innerhalb von 1 Stunde por-

tionsweise mit einer Mischung bestehend aus 20,6 g Natriumnitrat und 13,7 g Kaliumnitrat oxidiert. Es wird noch 1 Stunde bei 200°C nachgerührt und anschließend wie in Beispiel 1 zur Isolierung des Perylentetracarbonsäurediimids verfahren.

Man erhält 138 g Perylentetracarbonsäurediimid mit einem Reingehalt von 96,1 % d. Th.. Das entspricht einer Reinausbeute von 89,4 % d. Th..

10 Beispiel 3

480 g KOH-Pulver und 220 g NaOH-Pulver werden gemischt und auf 180°C erhitzt. Dann werden 170 g wasserfreies Natriumacetat unter Stickstoff eingetragen und die Temperatur auf 185°C gesteigert. Bei dieser Temperatur werden 150 g 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid zügig eingetragen. Die Schmelze wird auf 195°C geheizt und 1/2 Stunde bei dieser Temperatur gerührt. Anschließend wird innerhalb von 1 Stunde durch Zugabe von 103 g Kaliumperoxodisulfat oxidiert. Es wird 1 Stunde nachgerührt und danach wie in Beispiel 1 zur Isolierung des Perylentetracarbonsäurediimids verfahren.

Man erhält 139 g Perylentetracarbonsäurediimid mit einem Reingehalt von 95,4 % d. Th.. Das entspricht einer Reinausbeute von 89,3 % d. Th..

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid, dadurch gekennzeichnet, daß man 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid in einer Mischung aus
5 Kaliumhydroxid, Natriumhydroxid und Natriumacetat bei Temperaturen von 190°C - 210°C umsetzt und das Reaktionsprodukt oxidiert.
2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man das Reaktionsprodukt in der Reaktions-
10 schmelze oxidiert.
3. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß man pro Teil 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid 1 - 2 Teile Natriumhydroxid, 3 -
15 5 Teile Kaliumhydroxid und 1 - 1,5 Teile Natriumacetat einsetzt.
4. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß man pro Teil 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid 1,1 - 1,5 Teile Natriumhydroxid,
20 3,5 - 4,5 Teile Kaliumhydroxid und 1,1 - 1,3 Teile Natriumacetat einsetzt.
5. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man als Oxidationsmittel Sauerstoff, Sauerstoff enthaltende Gase, oxidierend wirkende Salze oder Addukte von Wasserstoff-
25 peroxid an Borate oder Carbonate verwendet.



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0054806

Nummer der Anmeldung

EP 81 11 0177

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.)
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	betrifft Anspruch	
A	<u>FR - A - 1 580 971</u> (HOECHST) * Zusammenfassung; Beispiele 2, 4, 6, 7, 9, 10 *	1	C 09 B 5/62 C 07 D 461/06
D	& DE - A - 1 619 531 --		
A	<u>DE - B - 1 138 876</u> (HOECHST) * Beispiel *	1	
A	<u>US - A - 1 625 826</u> (M.P. SCHMIDT) * Beispiel 2 * -----	1	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.) C 09 B 5/00 C 07 D 471/00
			KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE
			X: von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y: von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E: älteres Patentedokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D: in der Anmeldung angeführtes Dokument L: aus andern Gründen angeführtes Dokument
			B: Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer	
Den Haag	02-04-1982	DELANGHE	

2a



(11) Veröffentlichungsnummer : **0 054 806 B1**

(12)

EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

(45) Veröffentlichungstag der Patentschrift :
20.02.85

(51) Int. Cl.¹ : **C 09 B 5/62, C 07 D 471/06**

(21) Anmeldenummer : **81110177.3**

(22) Anmeldetag : **05.12.81**

(54) Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäuredilimid.

(30) Priorität : **19.12.80 DE 3047991**

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung :
30.08.82 Patentblatt 82/26

(45) Bekanntmachung des Hinweises auf die Patenterteilung : **20.02.85 Patentblatt 85/08**

(84) Benannte Vertragsstaaten :
CH DE GB LI

(58) Entgegenhaltungen :
DE-B- 1 138 876
FR-A- 1 580 971
US-A- 1 625 826

(73) Patentinhaber : **BAYER AG**
Konzernverwaltung RP Patentabteilung
D-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk (DE)

(72) Erfinder : **Schütze, Detlef-Ingo, Dr.**
Altenberger Domstrasse 170
D-5060 Bergisch-Gladbach 2 (DE)

EP 0 054 806 B1

Anmerkung : Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents im Europäischen Patentblatt kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid durch Umsetzung von 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid mit Alkali und Natriumacetat. Das entstehende Reaktionsprodukt wird, vorzugsweise direkt in der Reaktionsschmelze zu Perylentetracarbonsäurediimid oxidiert.

Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid sind seit Jahrzehnten bekannt. Bereits in der DE-PS 276 357, Bsp. 1 wird die Umsetzung von 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid in Alkalihydroxid bei 290 °C-300 °C beschrieben. Das Reaktionsgemisch wird nach beendeter Kondensation auf Wasser gegeben und durch Einleiten von Luft oxidiert.

Eine Variante dieses Verfahrens ist in BIOS Final Report Nr. 1484, Seite 21 angegeben. 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid wird in einer Mischung aus Kaliumhydroxid und Natriumacetat bei 220 °C umgesetzt und ebenfalls anschließend mit Luft in wäbrigem Medium oxidiert. Beide Verfahrensvarianten sind außerdem in der DE-OS 1 619 531 enthalten, wobei allerdings die Umsetzung des 1,8-Naphthalindicarbonsäureimids in Kaliumhydroxid und Natriumacetat bei 230-240 °C durchgeführt wird.

Das in der DE-PS 386 057 und in der DE-OS 1 619 531 beschriebene Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid geht von Perylentetracarbonsäure oder von ihrem Anhydrid aus, das mit Ammoniak kondensiert wird. Da jedoch Perylentetracarbonsäure aus Perylentetracarbonsäurediimid in konzentrierter Schwefelsäure bei Temperaturen oberhalb von 200 °C erhalten wird, stellt dieses Verfahren eine aufwendige und deshalb teure Verfahrensvariante dar.

Das neue Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäurediimid durch Umsetzen von 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid mit Alkali und Natriumacetat und Oxidieren des Reaktionsproduktes ist dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzung von 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid in einer Mischung aus Kaliumhydroxid, Natriumhydroxid und Natriumacetat bei Temperaturen von 185 °C-210 °C, vorzugsweise 195 °C-200 °C vorgenommen wird, und man das Reaktionsprodukt, vorzugsweise in der Reaktionsschmelze, oxidiert.

Die Oxidation kann in üblicher Weise durch Austragen des Reaktionsansatzes auf Wasser und Einleiten von Luft oder durch Umsetzung mit üblichen Oxidationsmitteln erfolgen. Besonders vorteilhaft oxidiert man jedoch direkt in der Reaktionsschmelze. Diese Verfahrensvariante weicht ab von allen bisher bekannten Verfahren, da sie die Oxidation nach Austragen der Schmelze auf Wasser vorsehen.

Für 1 Teil 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid werden vorzugsweise 1-2 Teile, besonders bevorzugt 1,1-1,5 Teile, Natriumhydroxid, 3-5 Teile, besonders bevorzugt 3,5-4,5 Teile, Kaliumhydro-

xid und 1-1,5 Teile, besonders bevorzugt 1,1-1,3 Teile, Natriumacetat eingesetzt.

Die Oxidation kann beispielsweise mit Sauerstoff, Sauerstoff enthaltenden Gasen, z. B. Luft, oder durch Zugabe von oxidierend wirkenden Salzen wie beispielsweise Nitraten, Dichromaten, Chloraten, Peroxodisulfaten, Addukten von Wasserstoffperoxid an Borate oder Carbonate u. a. durchgeführt werden. Bevorzugt ist Luft.

Das neue Verfahren liefert auf einfache Weise Perylentetracarbonsäurediimid von hoher Qualität und in guten Ausbeuten.

Ein weiterer Vorteil des neuen Verfahrens bei Oxidation in der Schmelze besteht darin, daß die Reaktionszeit nach Eintragen des 1,8-Naphthalindicarbonsäureimids bis zum Austragen auf Wasser und Isolieren ca. 3 Stunden beträgt, während beispielsweise nach der Vorschrift BIOS Final Report Nr. 1484, Seite 21, für Kondensation und Oxidation 23 Stunden benötigt werden.

Daß diese drastische Herabsetzung der Reaktionszeit nicht Ausbeute und Qualität des Reaktionsproduktes beeinträchtigt, muß als überraschend angesehen werden.

Außerdem ergeben sich für die Durchführung weitere Vorteile dadurch, daß beim Eintragen des 1,8-Naphthalindicarbonsäureimids in die Schmelze kein Schäumen auftritt, wie es nach den bekannten Verfahren bei höheren Temperaturen der Fall ist. Deshalb ist es beispielsweise möglich, bereits bei 185 °C zügig alles 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid einzutragen, und man erhält somit eine weitere Verkürzung der Reaktionszeit.

Die Aufarbeitung der Reaktionsschmelze nach der Oxidation erfolgt durch Zugabe von Wasser und Isolieren eines feuchten Preßkuchens, der anschließend in verdünnter Säure, z. B. Salzsäure, ausgekocht wird. Nach erneutem Isolieren wird getrocknet. Erfolgte die Oxidation im wäßrigen Milieu, wird das Reaktionsprodukt in üblicher Weise abgetrennt und gereinigt.

Das erhaltene Perylentetracarbonsäurediimid zeichnet sich durch eine hohe Qualität aus und kann entweder durch geeignete Verfahren direkt in ein Pigment überführt werden oder beispielsweise als Ausgangsmaterial für die Herstellung von Perylentetracarbonsäure, die wiederum ein Ausgangsmaterial für Pigmente oder Küpenfarbstoffe darstellt, oder für Pigment Rot 179 (N,N'-Dimethyl-perylentetracarbonsäurediimid) dienen.

Beispiel 1

584 g KOH-Pulver und 175 g NaOH-Pulver werden gemischt und auf 180 °C erhitzt. Anschließend werden 188 g wasserfreies Natriumacetat zugesetzt, auf 185 °C geheizt und zügig 150 g 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid eingetragen. Danach wird auf 195 °C erwärmt und unter gleichzeitigem Überleiten von 20 Litern Luft pro Stunde 2 1/2 Stunden bei dieser Temperatur

gerührt. Nach beendeter Reaktion werden 750 ml Wasser zugetropft und danach die Schmelze in 5 Liter Wasser eingerührt. Nach kurzzeitigem Erhitzen zum Sieden wird abgesaugt und mit Wasser gewaschen. Der feuchte Preßkuchen wird in 2 Litern Wasser, das mit 100 ml 36 %iger Salzsäure angesäuert worden ist, zum Sieden erhitzt, erneut abgesaugt, neutral gewaschen und getrocknet. Man erhält 141 g Perylentetracarbonsäuredilimid mit einem Reingehalt von 98,2 %. Das entspricht einer Reinausbeute von 93,4 % d. Th.

Beispiel 2

531 g KOH-Pulver und 219 g NaOH-Pulver werden gemischt und auf 180 °C erhitzt. Bei dieser Temperatur werden dann unter Stickstoff 171 g wasserfreies Natriumacetat zugesetzt und anschließend bei 185 °C zügig 150 g 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid eingetragen. Die Schmelze wird auf 200 °C geheizt und 1 Stunde bei dieser Temperatur gerührt. Danach wird innerhalb von 1 Stunde portionsweise mit einer Mischung bestehend aus 20,6 g Natriumnitrat und 13,7 g Kaliumnitrat oxidiert. Es wird noch 1 Stunde bei 200 °C nachgerührt und anschließend wie in Beispiel 1 zur Isolierung des Perylentetracarbonsäuredilimids verfahren.

Man erhält 138 g Perylentetracarbonsäuredilimid mit einem Reingehalt von 96,1 % d. Th. Das entspricht einer Reinausbeute von 89,4 % d. Th.

Beispiel 3

480 g KOH-Pulver und 220 g NaOH-Pulver werden gemischt und auf 180 °C erhitzt. Dann werden 170 g wasserfreies Natriumacetat unter Stickstoff eingetragen und die Temperatur auf 185 °C gesteigert. Bei dieser Temperatur werden 150 g 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid zügig eingetragen. Die Schmelze wird auf 195 °C geheizt und 1/2 Stunde bei dieser Temperatur gerührt. Anschließend wird innerhalb von 1 Stunde durch Zugabe von 103 g Kaliumperoxodisulfat oxidiert. Es wird 1 Stunde nachgerührt und danach wie in Beispiel 1 zur Isolierung des Perylentetracarbonsäuredilimids verfahren.

Man erhält 139 g Perylentetracarbonsäuredilimid mit einem Reingehalt von 95,4 % d. Th. Das entspricht einer Reinausbeute von 89,3 % d. Th.

Ansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Perylentetracarbonsäuredilimid durch Umsetzen von 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid mit Alkali und Natriumacetat und Oxidieren des Reaktionsprodukts, dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzung von 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid in einer Mischung aus Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid und Natriumacetat bei Temperaturen von 185-210 °C vorgenommen wird, und das Reaktionsprodukt, vorzugsweise in der Re-

aktionsschmelze, oxidiert.

2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man pro Teil 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid 1-2 Teile Natriumhydroxid, 3-5 Teile Kaliumhydroxid und 1-1,5 Teile Natriumacetat einsetzt.

3. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man pro Teil 1,8-Naphthalindicarbonsäureimid 1,1-1,5 Teile Natriumhydroxid, 3,5-4,5 Teile Kaliumhydroxid und 1,1-1,3 Teile Natriumacetat einsetzt.

4. Verfahren gemäß den Ansprüchen 1-3, dadurch gekennzeichnet, daß man als Oxidationsmittel Sauerstoff, Sauerstoff enthaltende Gase, oxidierend wirkende Salze oder Addukte von Wasserstoffperoxid an Borate oder Carbonate verwendet.

Claims

1. Process for the preparation of perylenetetracarboxylic acid diimide by reacting 1,8-naphthalenedicarboxylic acid imide with alkali and sodium acetate and oxidising the reaction product, characterised in that the reaction of 1,8-naphthalenedicarboxylic acid imide is carried out in a mixture of sodium hydroxide, potassium hydroxide and sodium acetate at temperatures of 185-210 °C and the reaction product is oxidised preferably in the reaction melt.

2. Process according to Claim 1, characterised in that per part of 1,8-naphthalenedicarboxylic acid imide 1-2 parts of sodium hydroxide, 3-5 parts of potassium hydroxide and 1-1.5 parts of sodium acetate are used.

3. Process according to Claim 1, characterised in that per part of 1,8-naphthalenedicarboxylic acid imide 1.1-1.5 parts of sodium hydroxide, 3.5-4.5 parts of potassium hydroxide and 1.1-1.3 parts of sodium acetate are used.

4. Process according to Claims 1-3, characterised in that oxygen, oxygen-containing gases, salts which have an oxidising action or adducts of hydrogen peroxide to borates or carbonates are used as the oxidising agent.

Revendications

1. Procédé pour la fabrication de dilimide d'acide pérylène-tétracarboxylique par réaction de l'imide d'acide 1,8-naphthalénedicarboxylique avec un alcali et l'acétate de sodium et oxydation du produit de réaction, caractérisé en ce que la réaction de l'imide d'acide 1,8-naphthalénedicarboxylique est effectuée dans un mélange d'hydroxyde de sodium, d'hydroxyde de potassium et d'acétate de sodium à des températures de 185-210 °C, et on oxyde le produit de réaction, de préférence dans la masse réactionnelle fondue.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on utilise 1-2 parties d'hydroxyde de sodium, 3-5 parties d'hydroxyde de potassium

et 1-1,5 partie d'acétate de sodium par partie d'imide d'acide 1,8-naphtalènedicarboxylique.

3. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on utilise 1,1-1,5 partie d'hydroxyde de sodium, 3,5-4,5 parties d'hydroxyde de potassium et 1,1-1,3 partie d'acétate de sodium par partie d'imide d'acide

1,8-naphtalènedicarboxylique.

4. Procédé selon les revendications 1-3, caractérisé en ce que l'on utilise comme agents d'oxydation l'oxygène, des gaz contenant de l'oxygène, des sels à action oxydante ou des produits d'addition de peroxyde d'hydrogène sur des borates ou des carbonates.

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

4